国際事務局 特許協力条約に基づいて公開された国際出願



(51) 国際特許分類6 FIO1L 33/00	A1	(11) 国際公開番号	WO98/05078
,		(43) 国際公開日	1998年2月5日(05.02.98)

JР

(21) 国際出願番号	PCT/JP97/0	2610
(22) 国際出願日	1997年7月29日(29.0	7.97)
(30) 優先権データ 特願平8/198585	1996年7月29日(29.07.96)	JР

特願平8/198585 1996年7月29日(29.07.96) 特願平8/244339 1996年9月17日(17.09.96) 特願平8/245381 1996年9月18日(18.09.96) 特願平8/359004 1996年12月27日(27.12.96) 特願平9/81010 1997年3月31日(31.03.97)

(71) 出願人

日亜化学工業株式会社

(NICHIA KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISHA)[JP/JP] 〒774 徳島県阿南市上中町岡491番地100 Tokushima, (JP)

(72) 発明者

清水義則(SHIMIZU, Yoshinori)

阪野顕正(SAKANO, Kensho)

野口泰延(NOGUCHI, Yasunobu)

森口敏生(MORIGUCHI, Toshio)

〒774 徳島県阿南市上中町岡491番地100

日亜化学工業株式会社内 Tokushima, (JP)

(74) 代理人

弁理士 青山 葆, 外(AOYAMA, Tamotsu et al.) 〒540 大阪府大阪市中央区城見1丁目3番7号 IMPビル 青山特許事務所 Osaka, (JP)

(81) 指定国 AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, HU, IL, IS, JP, KE, KG, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, UZ, VN, YU, ZW, ARIPO特許 (GH, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI特計 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類

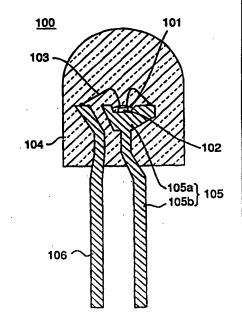
国際調査報告書

(54)Title: LIGHT EMITTING DEVICE AND DISPLAY DEVICE

(54)発明の名称 発光装置と表示装置

(57) Abstract

A light emitting device provided with a light emitting element having a semiconductor light emitting layer and a photoluminescence fluorophor which absorbs part of the light emitted from the light emitting element and emits light having a wavelength which is different from that of the absorbed light. The light emitting layer of the light emitting element is composed of a nitride compound semiconductor and the photoluminescence fluorophor contains a garnet-based fluorophor activated with cerium containing at least one element selected from among the elements of Y, Lu, Sc, La, Gd, and Sm and at least one element selected from among the elements of Al, Ga and In. As a result, a white light emitting diode having high luminance and a light emitting characteristic which is not deteriorated even when the diode is used for a long period of time is obtained.



明細書

発光装置と表示装置

技術分野

本願発明は、LEDディスプレイ、バックライト光源、信号機、照光式スイッチ及び各種インジケータなどに利用される発光ダイオードに関し、特に発光素子が発生する光の波長を変換して発光するフォトルミネセンス 蛍光体を備えた発光装置及びそれを用いた表示装置に関する。

背景技術

発光ダイオードは、小型で、効率が良く鮮やかな色の光の発光が可能で、 半導体素子であるため、球切れの心配がなく、初期駆動特性及び耐震性に 優れ、さらにON/OFF点灯の繰り返しに強いという特長を有する。そ のため、各種インジケータや種々の光源として広く利用されている。また、 最近では、超高輝度、高効率なRGB(赤、緑、青色)の発光ダイオードが それぞれ開発され、これらの発光ダイオードを用いた大画面のLEDディ スプレーが使用されるようになった。このLEDディスプレーは、少ない 電力で動作させることができ、軽量でしかも長寿命であるという優れた特 性を有し、今後益々使用されるものと期待される。

さらに、最近では、発光ダイオードを用いて、白色発光光源を構成する 試みが種々なされている。発光ダイオードを用いて白色光を得るためには、 発光ダイオードが単色性ピーク波長を有するので、例えば、R、G、Bの 3つの発光素子を近接して設けて発光させて拡散混色する必要がある。こ のような構成によって白色光を発生させようとした場合、発光素子の色調 や輝度等のバラツキにより所望の白色を発生させることができないという しかしながら、従来の発光ダイオードは、蛍光体の劣化によって色調がずれたり、あるいは蛍光体が黒ずみ光の外部取り出し効率が低下する場合があるという問題点があった。ここで、黒ずむというのは、例えば、(Cd, Zn)S蛍光体等の無機系の蛍光体を用いた場合には、この蛍光体を構成する金属元素の一部が析出したり変質したりして着色することであり、また、有機系の蛍光体材料を用いた場合には、2重結合が切れる等により着色することをいう。特に、発光素子である高エネルギーバンドギャップを有する半導体を用い、蛍光体の変換効率を向上させた場合(すなわち、半導体によって発光される光のエネルギーが高くなり、蛍光体が吸収することができるしきい値以上の光が増加し、より多くの光が吸収されるようになる。)、又は蛍光体の使用量を減らした場合(すなわち、相対的に蛍光体に照射されるエネルギー量が多くなる。)等においては、蛍光体が吸収する光のエネルギーが必然的に高くなるので、蛍光体の劣化が著しい。また、発光素子の発光強度を更に高め長期にわたって使用すると、蛍光体の劣化がさらに激しくなる。

また、発光素子の近傍に設けられた蛍光体は、発光素子の温度上昇や外部環境(例えば、屋外で使用された場合の太陽光によるもの等)によって高温にもさらされ、この熱によって劣化する場合がある。

さらに、蛍光体によっては、外部から侵入する水分や、製造時に内部に 含まれた水分と、上記光及び熱とによって、劣化が促進されるものもある。 またさらに、イオン性の有機染料を使用すると、チップ近傍では直流電 界により電気泳動を起こし、色調が変化する場合がある。

発明の開示

したがって、本願発明は上記課題を解決し、より高輝度で、長時間の使

ガーネット系蛍光体を含むことを特徴とする。

ここで、窒化物系化合物半導体(一般式 $In_iGa_iAl_kN$ 、ただし、 $0 \le i$, $0 \le j$, $0 \le k$, i+j+k=1)としては、 InGaNや各種 不純物がドープされたGaNを始め、種々のものが含まれる。

また、前記フォトルミネセンス蛍光体としては、 $Y_3Al_5O_{12}:Ce$ 、 $Gd_3In_5O_{12}:Ce$ を始め、上述のように定義される種々のものが含まれる。

この本願発明の発光装置は、高輝度の発光が可能な窒化物系化合物半導体からなる発光素子を用いているので、高輝度の発光をさせることができる。また、該発光装置において、使用している前記フォトルミネッセンス蛍光体は、長時間、強い光にさらされても蛍光特性の変化が少ない極めて耐光性に優れている。これによって、長時間の使用に対して特性劣化を少なくでき、発光素子からの強い光のみならず、野外使用時等における外来光(紫外線を含む太陽光等)による劣化も少なくでき、色ずれや輝度低下が極めて少ない発光装置を提供できる。また、この本願発明の発光装置は、使用している前記フォトルミネッセンス蛍光体が、短残光であるため、例えば、120 n s e c という比較的速い応答速度が要求される用途にも使用することができる。

本発明の発光ダイオードにおいては、前記フォトルミネセンス蛍光体が、 YとA1を含むイットリウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体を含む ことが好ましく、これによって、発光装置の輝度を高くできる。

本発明の発光装置においては、前記フォトルミネセンス蛍光体として、一般式(Re₁₋₁Sm₁) $_3$ (Al₁₋₁Ga₁) $_5$ O₁₂: Ceで表される蛍光体を用いることができ(ただし、0 \le r<1、0 \le s \le 1、Reは、Y、Gdから選択される少なくとも一種である。)、イットリウム・アルミニウ

ガーネット系蛍光体において、イットリウムの一部がガドリニウムに置換され、互いに置換量が異なる第1の蛍光体と第2の蛍光体とを含むようにしてもよい。

さらに、本発明の発光装置において、前記発光素子の発光スペクトルの 主ピークが400nmから530nmの範囲内に設定し、かつ前記フォト ルミネッセンス蛍光体の主発光波長が前記発光素子の主ピークより長くな るように設定することが好ましい。これによって、白色系の光を効率よく 発光させることができる。

またさらに、前記発光素子において、該発光素子の発光層がInを含む 窒化ガリウム系半導体を含んでなり、前記フォトルミネセンス蛍光体が、 イットリウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体において、Alの一部 がGaによってGa:Al=1:1から4:6の範囲内の比率になるよう に置換されかつYの一部がGdによってY:Gd=4:1から2:3の範 囲内の比率になるように置換されていることがさらに好ましい。このよう に調整されたフォトルミネセンス蛍光体の吸収スペクトルは、発光層とし てInを含む窒化ガリウム系半導体を有する発光素子の発光する光の波長 と非常によく一致し、変換効率(発光効率)を良くできる。また、該発光 素子の青色光と該蛍光体の蛍光光との混色による光は、演色性のよい良質 な白色となり、その点で極めて優れた発光装置を提供できる。

本発明の1つの態様の発光装置は、その一側面に前記フォトルミネセンス蛍光体を介して前記発光素子が設けられ、かつその一主表面を除く表面が実質的に反射部材で覆われた略矩形の導光板を備え、前記発光素子が発光した光を前記フォトルミネセンス蛍光体と導光板とを介して面状にして、前記導光板の前記一主表面から出力することを特徴とする。

本発明の別の態様の発光装置は、その一側面に前記発光素子が設けられ、

が、YとA 1 を含むイットリウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体を 含むことが好ましく。

また、本発明の発光ダイオードでは、前記フォトルミネッセンス蛍光体として、一般式 $(Re_{1-r}Sm_r)_3$ $(Al_{1-s}Ga_s)_5O_{12}$: Ceで表される蛍光体(ただし、 $0 \le r < 1$ 、 $0 \le s \le 1$ 、Reは、Y、Gdから選択される少なくとも一種である。)を用いても良い。

また、本発明の発光ダイオードでは、前記フォトルミネッセンス蛍光体として、一般式 $(Y_{1-p-q-r}Gd_{p}Ce_{q}Sm_{r})_{3}$ $(Al_{1-s}Ga_{s})_{5}O_{12}$ で表される(ただし、 $0 \le p \le 0.8$ 、 $0.003 \le q \le 0.2$ 、0.0003 $\le r \le 0.08$ 、 $0 \le s \le 1$)蛍光体を用いることもできる。

本発明の発光ダイオードにおいては、発光波長を所望の波長に調整するために、前記フォトルミネッセンス蛍光体は、それぞれYとAlとを含んでなる互いに組成の異なる2以上のセリウムで付活されたイットリウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体を含むようにすることが好ましい。

本発明の発光ダイオードでは同様に、発光波長を所望の波長に調整するために、前記フォトルミネッセンス蛍光体として、それぞれ一般式(Re $_{1-}$, Sm,) $_3$ (Al $_{1-}$, Ga,) $_5$ O $_{12}$: Ceで表され(ただし、0 \le r<1、0 \le s \le 1、Reは、Y、Gdから選択される少なくとも一種である。)、互いに組成の異なる2以上の蛍光体を用いてもよい。

本発明の発光ダイオードでは同様に、発光波長を所望の波長に調整するために、前記フォトルミネッセンス蛍光体として、一般式 Y_8 ($Al_{1-1}G$ a.) $_5O_{12}$: Ce で表される第1の蛍光体と、一般式 $Re_3Al_5O_{12}$: Ce で表される第2の蛍光体とを用いてもよい。ここで、 $0 \le s \le 1$ 、Re は、Y、Ga、La から選択される少なくとも一種である。

本発明の発光ダイオードでは同様に、発光波長を所望の波長に調整する

図3Aは実施形態1のセリウムで付活されたガーネット系蛍光体の励起 スペクトルを示すグラフである。

図3Bは実施形態1のセリウムで付活されたガーネット系蛍光体の発光スペクトルを示すグラフである。

図4は、実施の形態1の発光ダイオードの発光スペクトルを示すグラフである。

図5Aは実施形態2のセリウムで付活されたイットリウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体の励起スペクトルを示すグラフである。

図5Bは実施形態2のセリウムで付活されたイットリウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体の発光スペクトルを示すグラフである。

図6は、実施形態2の発光ダイオードの発光色を説明するための色度図であり、図中、A及びB点は発光素子が発光する光の発光色を示し、C点、D点は、それぞれ2種類のフォトルミネッセンス蛍光体からの発光色を示す。

図7は、本発明に係る別の実施形態の面状発光光源の模式的な断面図で ある。

図8は、図7とは異なる面状発光光源の模式的な断面図である。

図9は、図7及び図8とは異なる面状発光光源の模式的な断面図である。

図10は、本願発明の応用例である表示装置のブロック図10である。

図11は、図10の表示装置のLED表示器の平面図である。

図12は、本願発明の発光ダイオード及びRGBの4つの発光ダイオードを用いて一絵素を構成したLED表示器の平面図である。

図13Aは、実施例1及び比較例1の発光ダイオードの寿命試験の結果を示すグラフであって、25 $^{\circ}$ における結果であり、図13Bは、実施例1及び比較例1の発光ダイオードの寿命試験の結果を示すグラフであって、

図20Aは、 Y_8 A 1_5 O $_{12}$: Ceで表される実施例6のフォトルミネセンス蛍光体の発光スペクトルを示す。

図20Bは、発光ピーク波長450nmを有する実施例6の発光素子の 発光スペクトルを示す。

図20 Cは、実施例6の発光ダイオードの発光スペクトルを示す。

図21Aは、 Y_3 (A $1_{0.5}$ G $a_{0.5}$) ${}_5$ O ${}_{12}$: C e で表される実施例 7 の フォトルミネセンス蛍光体の発光スペクトルを示す。

図21Bは、発光ピーク波長450nmを有する実施例7の発光素子の 発光スペクトルを示す。

図21 Cは、実施例7の発光ダイオードの発光スペクトルを示す。

図22Aは、 $(Y_{0.8}Gd_{0.2})_3Al_5O_{12}$: Ceで表される実施例11のフォトルミネセンス蛍光体の発光スペクトルを示す。

図22Bは、 $(Y_{0.4}Gd_{0.6})_3Al_5O_{12}$: Ceで表される実施例11 のフォトルミネセンス蛍光体の発光スペクトルを示す。

図22Cは、発光ピーク波長470nmを有する実施例11の発光素子の発光スペクトルを示す。

図23は、実施例11の発光ダイオードの発光スペクトルを示す。

発明を実施するための最良の形態

以下、図面を参照して本発明の実施形態の説明をする。

図1の発光ダイオード100は、マウント・リード105とインナーリード106とを備えたリードタイプの発光ダイオードであって、マウント・リード105のカップ部105a上に発光素子102が設られ、カップ部105a内に、発光素子102を覆うように、所定のフォトルミネッセンス蛍光体を含むコーティング樹脂101が充填された後に、樹脂モールド

- 1, 通常、発光素子(LED)から放出される光は、発光素子に電力を 供給する電極を介して放出される。放出された光は、発光素子に形成され た電極の陰となり、特定の発光パターンを有し、そのために全ての方向に 均一に放出されない。しかしながら、蛍光体を備えた発光ダイオードは、 蛍光体により発光素子からの光を散乱させて光を放出するので、不要な発 光パターンを形成することなく、広い範囲に均一に光を放出することがで きる。
- 2. 発光素子(LED)からの光は、単色性ピークを有するといっても、 ある程度のスペクトル幅をもつので演色性が高い。このことは、比較的広 い範囲の波長を必要とする光源として使用する場合には欠かせない長所に なる。例えば、スキャナーの光源等に用いる場合は、スペクトル幅が広い ほうが好ましい。

以下に説明する実施形態1,2の発光ダイオードは、図1又は図2に示す構造を有する発光ダイオードにおいて、可視光域における光エネルギーが比較的高い窒化物系化合物半導体を用いた発光素子と、特定のフォトルミネッセンス蛍光体とを組み合わせたことを特徴とし、これによって、高輝度の発光を可能にし、長時間の使用に対して発光効率の低下や色ずれが少ないという良好な特性を有する。

一般的に蛍光体においては、短い波長の光を吸収して長い波長の光を放出する蛍光体の方が、長い波長の光を吸収して短い光を放出する蛍光体に 比較して変換効率が優れているので、本発明の発光ダイオードにおいては、 短い波長の青色系の発光が可能な窒化ガリウム系半導体発光素子(発光素 子)を用いることが好ましい。また、高い輝度の発光素子を用いることが 好ましいことは言うまでもない。

このような窒化ガリウム系半導体発光素子と組み合わせて用いるのに適

り白色系の発光が可能になる。

また、この実施形態1の発光ダイオードに用いた、セリウムで付活されたガーネット系フォトルミネッセンス蛍光体は耐光性及び耐候性を有するので、発光素子102、202から放出された可視光域における高エネルギー光を長時間その近傍で高輝度に照射した場合であっても発光色の色ずれや発光輝度の低下が極めて少ない白色光が発光できる。

以下、本実施形態1の発光ダイオードの各構成部材について詳述する。 (フォトルミネセンス蛍光体)

本実施形態1の発光ダイオードに用いられるフォトルミネセンス蛍光体は、半導体発光層から発光された可視光や紫外線で励起されて、励起した光と異なる波長を有する光を発光するフォトルミネセンス蛍光体である。具体的にはフォトルミネセンス蛍光体として、Y、Lu、Sc、La、Gd及びSmから選択された少なくとも1つの元素と、A1、Ga及びInから選択された少なくとも1つの元素とを含み、セリウムで付活されたガーネット系蛍光体である。本発明では、該蛍光体として、YとA1を含みセリウムで付活されたイットリウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体、又は、一般式(Re1-、Smr)3(A11-。Ga、)5O12:Ce(但し、0 \leq r <1、0 \leq s \leq 1、Reは、Y、Gdから選択される少なくとも一種)であらわされる蛍光体を用いることが好ましい。窒化ガリウム系化合物半導体を用いた発光素子が発光するLED光と、ボディーカラーが黄色であるフォトルミネセンス蛍光体が発光する蛍光光が補色関係にある場合、LED光と、蛍光光とを混色して出力することにより、全体として白色系の光を出力することができる。

本実施形態1において、このフォトルミネセンス蛍光体は、上述したように、コーテイング樹脂101. コーテイング部201を形成する樹脂(詳

Bに示すように、580nm付近にあり700nmまで裾を引くブロードな発光スペクトルを持つ。また、実施形態1のフォトルミネッセンス蛍光体は、結晶中にGdを含有することにより、460nm以上の長波長域における励起発光効率を高くすることができる。Gdの含有量の増加により、発光ピーク波長が、長波長に移動し、全体の発光波長も長波長側にシフトする。すなわち、赤みの強い発光色が必要な場合、Gdによる置換量を多くすることで達成することができる。一方、Gdが増加するするとともに、青色光によるフォトルミネッセンスの発光輝度は低下する傾向にある。

特に、ガーネット構造を有するYAG系蛍光体の組成の内、Alo一部をGaで置換することで、発光波長が、短波長側にシフトするまた組成のYo一部をGdで置換することにより、発光波長が長波長側にシフトする。表1に一般式 $(Y_{1-a}Gd_a)_3 (Al_{1-b}Ga_b)_5O_{12}$: Ceで表されるYAG系蛍光体の組成とその発光特性を示す。

表1

No.	Gd含有量	Ga含有量	CIE色	度座標	輝度	効率
	a (fut)	b (fut)	х	У	Y	-
1	0. 0	0. 0	0.41	0.56	100	100
2	0. 0	0. 4	0.32	0. 56	6 1	6 3
3	0. 0	0. 5	0.29	0. 54	5 5	6 7
4	0. 2	0. 0	0.45	0.53	102	108
(5)	0.4	0. 0	0.47	0. 52	102	113
6	0. 6	0. 0	0.49	0. 51	97	113
7	0.8	0. 0	0.50	0.50	7 2	8 6

50 n m付近の青色系発光素子からのLED光による励起効率が高い。さらに、ピーク波長がGdの組成比で連続的に変えられるなど窒化物半導体発光素子の青色系発光を白色系発光に変換するための理想条件を備えている。

また、実施形態1では、窒化ガリウム系半導体を用いた発光素子と、セリウムで付活されたイットリウム・アルミニウム・ガーネット蛍光体(YAG)に希土類元素のサマリウム(Sm)を含有させたフォトルミネセンス蛍光体とを組み合わせることにより、発光ダイオードの発光効率をさらに向上させることができる。

このようなフォトルミネセンス蛍光体は、Y、Gd、Ce、Sm、A1 及びGa の原料として酸化物、Yは高温で容易に酸化物になる化合物を使用し、それらを所定の化学量論比で十分に混合して混合原料を作製し、作製された混合原料に、フラックスとしてフッ化アンモニウム等のフッ化物を適量混合して坩堝に詰め、空気中1350~1450%の温度範囲で2~5時間焼成して焼成品を得、次に焼成品を水中でポールミルして、洗浄、分離、乾燥、最後に篩を通すことにより作製できる。

上述の作製方法において、混合原料は、Y、Gd、Ce、Smの希土類元素を化学量論比で酸に溶解した溶解液を蓚酸で共沈したものを焼成して得られる共沈酸化物と、酸化アルミニウム、酸化ガリウムとを混合することにより作製してもよい。

一般式 $(Y_{1-p-q-r}Gd_pCe_qSm_r)_3Al_5O_{12}$ で表すことができるフォトルミネセンス蛍光体は、結晶中にGdを含有することにより、特に460 n m以上の長波長域の励起発光効率を高くすることができる。また、ガドリニウムの含有量を増加させることにより、発光ピーク波長を、530 n mから570 n mまで長波長に移動させ、全体の発光波長も長波長側に

Ceの含有量 q が 0.0 3 以下では、Ceによるフォトルミネセンスの励起発光中心の数が減少するために輝度が低下し、逆に、0.2 より大きくなると濃度消光が生ずる。ここで、濃度消光とは、蛍光体の輝度を高めるために付活剤の濃度を増加していくとある最適値以上の濃度では発光強度が低下することである。

本願発明の発光ダイオードにおいては、A1、Ga、Y及びGdやSmの含有量が異なる2種類以上の($Y_{1-p-q-r}Gd_pCe_qSm_r$) $_3A1_5O_{12}$ フォトルミネセンス蛍光体を混合して用いてもよい。これによって、蛍光発光中のRGBの波長成分を増やすことができ、これに、例えばカラーフィルターを用いることによりフルカラー液晶表示装置用としても利用できる。(発光素子102、202)

発光素子は、図1及び図2に示すように、モールド部材に埋設されることが好ましい。本願発明の発光ダイオードに用いられる発光素子は、セリウムで付活されたガーネット系蛍光体を効率良く励起できる窒化ガリウム系化合物半導体を用いた発光素子1の2、202は、MOCVD法等により基板上にInGaN等の窒化ガリウム系半導体を発光層として形成することにより作製される。発光素子の構造としては、MIS接合、PIN接合やPN接合などを有するホモ構造へテロ構造あるいはダブルへテロ構成のものが挙げられる。半導体層の材料やその混晶度によって発光波長を種々選択することができる。また、半導体活性層を量子効果が生ずる程度に薄く形成した単一量子井戸構造や多重量子井戸構造とすることもできる。特に、本願発明においては、発光素子の活性層をInGaNの単一量子井戸構造とすることにより、フォトルミネセンス蛍光体の劣化がなく、より高輝度に発光する発光ダイオードとして利用することができる。

トルミネセンス蛍光体との補色関係や樹脂の劣化等を考慮して発光素子の発光波長は400nm以上530nm以下に設定することが好ましく、420nm以上490nm以下に設定することがより好ましい。発光素子とフォトルミネセンス蛍光体との効率をそれぞれより向上させるためには、450nm以上475nm以下に設定することがさらに好ましい。実施形態1の白色系発光ダイオードの発光スペクトルの一例を図4に示す。ここに例示した発光ダイオードは、図1に示すリードタイプのものであって、後述する実施例1の発光素子とフォトルミネッセンス蛍光体とを用いたものである。ここで、図4において、450nm付近にピークを持つ発光が発光素子からの発光であり、570nm付近にピークを持つ発光が発光素子によって励起されたフォトルミネセンスの発光である。

また、表1に示した蛍光体とピーク波長465nmの青色LED(発光素子)とを組み合わせた白色系発光ダイオードで、実現できる色再現範囲を図16に示す。この白色系発光ダイオードの発光色は、青色LED起源の色度点と蛍光体起源の色度点とを結ぶ直線上のいずれかに位置するので、表1の①~⑦の蛍光体を使用することにより、色度図中央部の広範な白色領域(図16中斜線を付した部分)をすべてカバーすることができる。図17は、白色系発光ダイオードにおける蛍光体の含有量を変化させた時の発光色の変化を示したものである。ここで、蛍光体の含有量は、コーティング部に使用する樹脂に対する重量パーセントで示している。図17から明らかなように、蛍光体の量を増やせば蛍光体の発光色に近付き、減らすと青色LEDに近付く。

なお、本願発明では、蛍光体を励起する光を発生する発光素子に加えて、 蛍光体を励起しない発光素子を一緒に用いることもできる。具体的には、 蛍光体を励起可能な窒化物系化合物半導体である発光素子に加えて、蛍光 載置する十分な大きさがあれば良い。また、複数の発光素子をカップ内に設け、マウント・リードを発光素子の共通電極として利用する場合においては、異なる電極材料を用いる場合があるので、それぞれに十分な電気伝導性とボンディングワイヤー等との接続性が求められる。また、マウント・リード上のカップ内に発光素子を配置すると共に蛍光体をカップ内部に充填する場合は、蛍光体からの光が当方的に放出されたとしても、カップにより所望の方向に反射されるので、近接して配置させた別の発光ダイオードからの光による疑似点灯を防止することができる。ここで、擬似点灯とは、近接して配置された別の発光ダイオードに電力を供給していなくても発光しているように見える現象のことをいう。

発光素子102とマウント・リード105のカップ部105 a との接着は、エポキシ樹脂、アクリル樹脂やイミド樹脂等の熱硬化性樹脂などを用いて行うことができる。また、フェースダウン発光素子(基板側から発光を取り出すタイプであって、発光素子の電極をカップ部105 a に対向させて取り付けるように構成されたもの)を用いる場合は、該発光素子をマウント・リードと接着させると共に電気的に導通させるために、Agペースト、カーボンペースト、金属バンプ等を用いることができる。さらに、発光ダイオードの光利用効率を向上させるために発光素子が配置されるマウント・リードのカップ部の表面を鏡面状とし、表面に反射機能を持たせても良い。この場合の表面粗さは、0.15以上0.85以下が好ましい。また、マウント・リードの具体的な電気抵抗としては $300\mu\Omega$ ・cm以下が好ましく、より好ましくは、 $3\mu\Omega$ ・cm以下である。また、マウント・リード上に複数の発光素子を積置する場合は、発光素子からの発熱量が多くなるため熱伝導度がよいことが求められ、その熱伝導度は、0.01 cal/(s)(\mathbb{C}/\mathbb{C} m)以上が好ましく、より好ましく

コーティング部101は、モールド部材104とは別にマウント・リードのカップに設けられるものであり、本実施の形態1では、発光素子の発光を変換するフォトルミネセンス蛍光体が含有されるものである。コーティング部の具体的材料としては、エポキシ樹脂、ユリア樹脂、シリコーンなどの耐侯性に優れた透明樹脂や硝子などが適する。また、フォトルミネセンス蛍光体と共に拡散剤を含有させても良い。具体的な拡散剤としては、チタン酸バリウム、酸化チタン、酸化アルミニウム、酸化珪素等を用いることが好ましい。さらに、蛍光体をスパッタリングにより形成する場合、コーティング部を省略することもできる。この場合、膜厚を調整したり蛍光体層に開口部を設けることで混色表示が可能な発光ダイオードとすることができる。

(モールド部材104)

モールド部材104は、発光素子102、導電性ワイヤー103、フォトルミネセンス蛍光体が含有されたコーティング部101などを外部から保護する機能を有する。本実施形態1では、モールド部材104にさらに拡散剤を含有させることが好ましく、これによって発光素子102からの指向性を緩和させることができ、視野角を増やすことができる。また、モールド部材104は、発光ダイオードにおいて、発光素子からの発光を集束させたり拡散させたりするレンズ機能を有する。従って、モールド部材104は、通常、凸レンズ形状、凹レンズ形状さらには、発光観測面から見て楕円形状やそれらを複数組み合わせた形状に形成される。また、モールド部材104は、それぞれ異なる材料を複数積層した構造にしてもよい。モールド部材104の具体的材料としては、主としてエポキシ樹脂、ユリア樹脂、シリコーン樹脂などの耐候性に優れた透明樹脂や硝子などが好適に用いられる。また、拡散剤としては、チタン酸バリウム、酸化チタン、

以上のフォトルミネセンス蛍光体、好ましくはセリウムで付活されたイットリウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体を含む蛍光体を用いる。これにより実施の形態2の発光ダイオードは、発光素子によって発光されるしED光の発光波長が、製造バラツキ等により所望値からずれた場合でも、2種類以上の蛍光体の含有量を調節することによって所望の色調を持った発光ダイオードを作製できる。この場合、発光波長が比較的短い発光素子に対しては、発光波長が比較的短い蛍光体を用い、発光波長が比較的長い発光素子に対しては、発光波長が比較的短い蛍光体を用い、発光波長が比較的長い発光素子には発光波長が比較的長い蛍光体を用いることで発光ダイオードから出力される発光色を一定にすることができる。

蛍光体に関して言うと、フォトルミネセンス蛍光体として、一般式(Re_{1-r}Sm_r) $_3$ (Al_{1-r} Ga_r) $_5$ O₁₂:Ceで表されるセリウムで付活された蛍光体を用いることもできる。但し、 $0 < r \le 1$ 、 $0 \le s \le 1$ 、Reは、Y、Gd、Laから選択される少なくとも一種である。これにより発光素子から放出された可視光域における高エネルギーを有する光が長時間高輝度に照射された場合や種々の外部環境の使用下においても蛍光体の変質を少なくできるので、発光色の色ずれや発光輝度の低下が極めて少なく、かつ高輝度の所望の発光成分を有する発光ダイオードを構成できる。

(実施の形態2のフォトルミネセンス蛍光体)

実施の形態2の発光ダイオードに用いられるフォトルミネセンス蛍光体について詳細に説明する。実施の形態2においては、上述したように、フォトルミネセンス蛍光体として組成の異なる2種類以上のセリウムで付活されたフォトルミネセンス蛍光体を使用した以外は、実施の形態1と同様に構成され、蛍光体の使用方法は実施の形態と同様である。

また、実施形態1と同様に、フォトルミネセンス蛍光体の分布を種々変える(発光素子から離れるに従い濃度勾配をつける等)ことによって耐候

となる。

ガーネット構造を持ったYAG系蛍光体の組成の内、A1の一部をGaで置換することで発光波長が短波長側にシフトし、また組成のYの一部をGd及び/又はLaで置換することで、発光波長が長波長側へシフトする。A1のGaへの置換は、発光効率と発光波長を考慮してGa:A1=1:1から4:6が好ましい。同様に、Yの一部をGd及び/又はLaで置換することは、Y:Gd及び/又はLa=9:1から1:9であり、より好ましくは、Y:Gd及び/又はLa=9:1から2:3である。置換が2割未満では、緑色成分が大きく赤色成分が少なくなる。また、6割以上では、赤み成分が増えるものの輝度が急激に低下する。

このようなフォトルミネセンス蛍光体は、Y、Gd、Ce、La、A1、Sm及びGaの原料として酸化物、又は高温で容易に酸化物になる化合物を使用し、それらを化学量論比で十分に混合して原料を得る。又は、Y、Gd、Ce、La、Smの希土類元素を化学量論比で酸に溶解した溶解液を蓚酸で共沈したものを焼成して得られる共沈酸化物と、酸化アルミニウム、酸化ガリウムとを混合して混合原料を得る。これにフラックスとしてフッ化アンモニウム等のフッ化物を適量混合して坩堝に詰め、空気中1350~1450℃の温度範囲で2~5時間焼成して焼成品を得、次に焼成品を水中でボールミルして、洗浄、分離、乾燥、最後に篩を通すことで得ることができる。本実施形態2において、組成の異なる2種類以上のセリウムで付活されたイットリウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体は、混合して用いても良いし、それぞれ独立して配置(例えば、積層)して用いても良い。2種類以上の蛍光体を混合して用いた場合、比較的簡単に量産性よく色変換部を形成することができ、2種類以上の蛍光体を独立して配置した場合は、所望の色になるまで重ね合わせることにより、形成後に

換ざれた光は発光素子から放出される光よりも長波長側になっているために、発光素子の窒化物半導体層のバンドギャップよりも小さく、該窒化物半導体層に吸収されにくい。従って、蛍光体が等方的に発光するために発光された光はLED素子にも向かうが、蛍光体によって発光された光はLED素子に吸収されることはないので、発光ダイオードの発光効率を低下させることはない。

(面状発光光源)

本発明に係る別の実施形態である面状発光光源の例を図7に示す。

図7に示す面状発光光源では、実施形態1又は2で用いたフォトルミネセンス蛍光体が、コーティング部701に含有されている。これによって、窒化ガリウム系発光素子が発生する青色系の光を、コーティング部で色変換した後、導光板704及び散乱シート706を介して面状にして出力する。

詳細に説明すると、図7の面状発光光源において、発光素子702は、 絶縁層及び導電性パターン(図示せず)が形成されたコの字形状の金属基板703内に固定される。発光素子の電極と導電性パターンとを導通させた後、フォトルミネセンス蛍光体をエポキシ樹脂と混合して発光素子702が積載されたコの字型の金属基板703の内部に充填する。こうして固定された発光素子702は、アクリル性の導光板704の一方の端面にエポキシ樹脂などで固定される。導光板704の一方の主面上の散乱シート706が形成されていない部分には、点状に発光する蛍現象防止のため白色散乱剤が含有されたフィルム状の反射部材707が形成される。

同様に、導光板704の他方の主表面(裏面側)全面及びや発光素子が 配置されていない他方の端面上にも反射部材705を設け発光効率を向上 させるように構成する。これにより、例えば、LCDのバックライト用と WO 98/05078 PCT/JP97/02610

ここで、LED表示器601は、図11に示すように、図1又は図2に示す白色系の発光ダイオード501が、筐体504にマトリクス状に配列され、白黒用のLED表示装置として使用される。ここで、筐体504には 遮光部材505が一体で成形されている。

駆動回路610は、図10に示すように、入力される表示データを一時的に記憶する画像データ記憶手段(RAM)603と、RAM603から読み出したデータに基づいてLED表示器601のそれぞれの発光ダイオードを所定の明るさに点灯させるための階調信号を演算して出力する階調制御手段604と、階調制御手段604から出力される信号によってスイッチングされて、発光ダイオードを点灯させるドライバー602とを備える。階調制御回路604は、RAM603に記憶されるデータを取り出してLED表示器601の発光ダイオード点灯時間を演算して点滅させるパルス信号をLED表示器601に出力する。以上のように構成された表示装置において、LED表示器601は、駆動回路から入力されるパルス信号に基づいて表示データに対応した画像を表示することができ、以下のような利点がある。

すなわち、RGBの3つの発光ダイオードを用いて白色系の表示をさせるLED表示器は、RGBの各発光ダイオードの発光出力を調節して表示させる必要があるため、各発光ダイオードの発光強度、温度特性などを考慮して各発光ダイオードを制御しなければならないので、該LED表示器を駆動する駆動回路は複雑になるという問題点があった。しかしながら、本願発明の表示装置においては、LED表示器601が、RGBの3種類の発光ダイオードを用いることなく、本願発明に係る白色系の発光が可能な発光ダイオード501を用いて構成されているので、駆動回路がRGBの各発光ダイオードを個別に制御する必要がなく、駆動回路の構成を簡単の各発光ダイオードを個別に制御する必要がなく、駆動回路の構成を簡単

づいて各発光ダイオードを所定の明るさに点灯させるための階調信号を演算する階調制御回路と、階調制御回路の出力信号でスイッチングされて、各発光ダイオードを点灯させるドライバーとを備える。ただし、この駆動回路は、RGBと白色系に発光する各発光ダイオードをそれぞれ制御する専用の回路を必要とする。階調制御回路は、RAMに記憶されるデータから、それぞれの発光ダイオードの点灯時間を演算して、点滅させるパルス信号を出力する。ここで、白色系の表示を行う場合は、RGB各発光ダイオードを点灯するパルス信号のパルス幅を短く、あるいは、パルス信号のピーク値を低く、あるいは全くパルス信号を出力しないようにする。他方、それを補償するように(すなわち、パルス信号のパルス幅を短く、あるいは、パルス信号のピーク値を低く、あるいは全くパルス信号を出力しない分を補うように)白色系発光ダイオードにパルス信号を供給する。これにより、LED表示器の白色を表示する。

このように、RGBの発光ダイオードに白色発光ダイオードを追加することによって、ディスプレーの輝度を向上させることができる。また、RGBの組合せで白色を表示しようとすると、見る角度によってRGBのうちのいずれか1つ又はいずれか2つの色が強調され、純粋な白を表現することができないが、本表示装置のように白色の発光ダイオードを追加することにより、そのような問題を解決することができる。

このような表示装置における駆動回路では、白色系発光ダイオードを所望の輝度で点灯させるためのパルス信号を演算する階調制御回路としてCPUを別途備えることが好ましい。階調制御回路から出力されるパルス信号は、白色系発光ダイオードのドライバーに入力されてドライバをスイッチングさせる。ドライバーがオンになると白色系発光ダイオードが点灯され、オフになると消灯される。

イオード群や残った発光ダイオードにより信号機を円形状に均一に発光させることが可能となるり、色ずれが生ずることもない。渦巻き状に配置してあることから中心部を密に配置することができ電球発光の信号と何ら違和感なく駆動させることができる。

<実施例>

以下、本願発明の実施例について説明するが、本願発明は、以下に示す 実施例のみに限定されるものではないことを念のために言っておく。

(実施例1)

実施例1は、発光素子として、GaInN半導体を用いた発光ピークが 450nm、半値幅30nmの発光素子を用いた例である。実施例1の発 光素子は、洗浄されたサファイ基板上にTMG (トリメチルガリウム)ガ ス、TMI(トリメチルインジウム)ガス、窒素ガス及びドーバントガス をキャリアガスと共に流し、MOCVD法で窒化ガリウム系化合物半導体 を成膜することにより作製される。成膜時に、ドーパントガスとしてSi H₄とCp₂Mgと、を切り替えることによってN型導電性を有する窒化ガ リウム半導体とP型導電性を有する窒化ガリウム半導体を形成する。実施 例1のLED素子は、N型導電性を有する窒化ガリウム半導体であるコン タクト層と、P型導電性を有する窒化ガリウムアルミニウム半導体である クラッド層、P型導電性を有する窒化ガリウム半導体層であるコンタクト 層を備え、N型導電性を有するコンタクト層とP型導電性を有するクラッ ド層との間に厚さ約3nmの、単一量子井戸構造を構成するためのノンド ープInGaNからなる活性層が形成されている。尚、サファイア基板上 には、バッファ層として低温で窒化ガリウム半導体層が形成されている。 また、P型窒化ガリウム半導体は、成膜後400℃以上の温度でアニール されている。

WO 98/05078 PCT/JP97/02610

照射強度は、約3. 5 W/c m²である。その後、さらに発光素子やフォートルミネセンス蛍光体を外部応力、水分及び塵芥などから保護する目的でモールド部材として透光性エポキシ樹脂を形成した。ここで、モールド部材は、砲弾型の型枠の中に、リードフレームにボンディングされ、フォトルミネセンス蛍光体を含んだコーティング部に覆われた発光素子を挿入して、透光性エポキシ樹脂を注入した後、150 \mathbb{C} 5 時間にて硬化させて形成した。

この要に形成した発光ダイオードは、発光観測正面から見ると、フォトルミネセンス蛍光体のボディーカラーにより中央部が黄色っぽく着色されていた。

こうして得られた白色系が発光可能な発光ダイオードの色度点、色温度、演色性指数を測定した結果、それぞれ、色度点は、(x=0.302,y=0.280)、色温度8080K、演色性指数 (Ra)=87.5と三波長型蛍光灯に近い性能を示した。また、発光効率は9.51m/wと白色電球並であった。さらに、温度25%0mA通電、温度25%20mA通電、温度60%90%RH下で20mA通電の各寿命試験においても蛍光体に起因する変化は観測されず通常の青色発光ダイオードと寿命特性に差がないことが確認できた。

(比較例1)

フォトルミネセンス蛍光体を($Y_{0.8}Gd_{0.2}$) $_{3}Al_{5}O_{12}$:Ce蛍光体から(ZnCd)S:Cu、Alとした以外は、実施例1と同様にして発光ダイオードの形成及び寿命試験を行った。形成された発光ダイオードは通電直後、実施例1と同様、白色系の発光が確認されたが輝度は低かった。また、寿命試験においては、約<math>100時間で出力がゼロになった。劣化原因を解析した結果、蛍光体が黒化していた。

d、Ceo 希土類元素に加えSmを含有させた、一般式($Y_{0.39}Gd_{0.57}$ $Ce_{0.03}Sm_{0.01}$) $_{3}Al_{5}O_{12}$ 蛍光体を用いた以外は、実施例1 と同様に作製した。この実施例3 の発光ダイオードを100 個作製し、130 $^{\circ}$ の高温下において評価した結果、実施例1 の発光ダイオードと比較して平均温度特性が8%ほど良好であった。

(実施例4)

実施例4のLED表示器は、実施例1の発光ダイオードが、図11に示すように銅パターンを形成したセラミックス基坂上に、16×16のマトリックス状に配列されて構成される。尚、実施例4のLED表示器では、発光ダイオードが配列された基板は、フェノール樹脂からなり遮光部材505が一体で形成された筐体504内部に配置され、発光ダイオードの先端部を除いて筐体、発光ダイオード、基板及び遮光部材の一部をピグメントにより黒色に着色したシリコンゴム506が充填される。また、基板と発光ダイオードとの接続は、自動ハンダ実装装置を用いてハンダ付けを行った。

以上のように構成されたLED表示器を、入力される表示データを一時的に記憶するRAM及びRAMに記憶されるデータを取り出して発光ダイオードを所定の明るさに点灯させるための階調信号を演算する階調制御回路と階調制御回路の出力信号でスイッチングされて発光ダイオードを点灯させるドライバーとを備えた駆動手段によって駆動することにより白黒LED表示装置として使用できることを確認した。

(実施例5)

実施例5の発光ダイオードは、フォトルミネセンス蛍光体として一般式 $(Y_{0.2}Gd_{0.8})_3Al_5O_{12}$: Ceで表される蛍光体を用いた以外は、実 施例1と同様にして作製した。この実施例5の発光ダイオードを100個

色の光を発光することができ、寿命試験においては、実施例1と同様に優れた耐候性を示していた。

図21A、図21B及び図21Cにそれぞれ、実施例7のフォトルミネセンス蛍光体、発光素子及び発光ダイオードの各発光スペクトルを示す。 (実施例8)

その結果、実施例8の発光ダイオードは、輝度は低いが、寿命試験においては、実施例1と同様に優れた耐候性を示していた。

(実施例9)

実施例9の発光ダイオードは、図7に示す構成を有する面状発光の発光 装置である。

発光素子として発光ピークが450nmのIn。の5Ga。の5N半導体を用いた。発光素子は、洗浄させたサファイヤ基板上にTMG(トリメチルガリウム)ガス、TMI(トリメチルインジュウム)ガス、窒素ガス及びドーパントガスをキャリアガスと共に流し、MOCVD法で窒化ガリウム系化合物半導体を成膜することにより形成した。ドーパントガスとしてSiH4とCp2Mgと、を切り替えることによってN型導電性を有する窒化ガリウム半導体とP型導電性を有する窒化ガリウム半導体を形成しPN接合を形成した。半導体発光素子としては、N型導電性を有する窒化ガリウムアルミニウム半導体であるクラッド層、P型導電性を有する窒化ガリウムアルミニウム半導体であるクラッド層、P型導電性を有する窒化ガリウム半導体であるクラッド層、P型導電性を有する窒化ガリウム半導体であるクラッド層、P型導電性を有する窒化ガリウム半導体であるクラッド層、P型導電性を有する窒化ガリウム半導体であるクラッド層、P型導電性を有する窒化ガリウム半導体であるクラッド層、P型導電性を有する窒化ガリウム半導体で

ールミルして、洗浄、分離、乾燥、最後に篩を通して形成した。

以上のようにして作製された、一般式 Y_3 ($A_{0.6}$ G $a_{0.4}$) $_5$ O $_{12}$: $C_{0.6}$ C $a_{0.4}$ O $_5$ O $_{12}$: $C_{0.6}$ C $a_{0.6}$ O $_5$ A $_1$ C $_2$: $C_{0.6}$ C $a_{0.6}$ O $_5$ A $_1$ C $_2$: $C_{0.6}$ C $a_{0.6}$ O $_5$ A $_1$ C $_2$: $C_{0.6}$ C $a_{0.6}$ O $_5$ A $_1$ C $_1$ C $_2$ 1C $a_{0.6}$ C $a_{0.6}$ O $_5$ A $_1$ C $a_{0.6}$ O $_5$ C $a_{0.6}$ C $a_{0.6}$ O $_5$ C $a_{0.6}$ C $a_{0.6}$ O $_5$ C $a_{0.6}$ C $a_{0.6}$ C $a_{0.6}$ C $a_{0.6}$ C $a_{0.6}$ O $_5$ C $a_{0.6}$ C $a_{$

(比較例2)

実施例9の一般式 Y_3 ($Al_{0.6}Ga_{0.4}$) $_5O_{12}$:Cere表される緑色系が発光可能な第1の蛍光体、及び一般式($Y_{0.4}Gd_{0.6}$) $_3Al_5O_{12}$:Cere表される赤色系が発光可能な第2の蛍光体からなるフォトルミネセンス蛍光体に代えて、それぞれペリレン系誘導体である緑色有機蛍光顔料(シンロイヒ(SINLOIHI)化学製FA-001)と赤色有機蛍光顔料(シンロイヒ化学製FA-005)とを用いて同量で混合攪拌した以外は、実施例9と同様にして発光ダイオードを作製して実施例9と同様の耐侯試験を行った。作製した比較例1の発光ダイオードの色度点は、(x=0. 34、y=0. 35)であった。耐侯性試験として、カーボンy=00. 350 であった。耐侯性試験として、カーボンy=00 で紫

以上のようにして作製された第1の蛍光体及び第2の蛍光体それぞれ40重量部を、エポキシ樹脂100重量部に混合してスラリーとし、このスラリーを発光素子が配置されたマウント・リード上のカップ内に注入した。注入後、注入されたフォトルミネセンス蛍光体を含有する樹脂を130℃1時間で硬化させた。こうして発光素子上に厚さ120μのフォトルミネセンス蛍光体が含有されたコーティング部材を形成した。なお、このコーティング部材は、発光素子に近いほどフォトルミネセンス蛍光体の量が徐々に多くなるように形成した。その後、さらに発光素子やフォトルミネセンス蛍光体を外部応力、水分及び塵芥などから保護する目的でモールド部材として透光性エポキシ樹脂を形成した。モールド部材は、砲弾型の型枠の中にフォトルミネセンス蛍光体のコーティング部が形成されたリードフレームを挿入し透光性エポシキ樹脂を混入後、150℃5時間にて硬化させて形成した。このようにして作製された実施例10の発光ダイオードは、発光観測正面から視認するとフォトルミネセンス蛍光体のボディーカラーにより中央部が黄色っぽく着色されていた。

以上のように作製した実施例10の発光ダイオードの色度点、色温度、演色性指数を測定した結果、色度点は、(x=0.32,y=0.34)であり、演色性指数 (Ra)=89.0、発光効率は101m/wであった。さらに耐侯試験として室温60mA通電、室温20mA通電、60C90%RH下で20mA通電の各試験においてもフォトルミネセンス蛍光体に起因する変化は観測されず通常の青色系発光ダイオードと寿命特性に差がないことが確認できた。

(実施例11)

LED素子として発光ピークが470nmのIn $_{0.4}Ga$ $_{0.6}$ N半導体を用いた。発光素子は、洗浄させたサファイヤ基板上にTMG(トリメチル

分散したものをスクリーン印刷及び硬化して膜状に形成した。

一方、フォトルミネセンス蛍光体は、一般式($Y_{0.8}Gd_{0.2}$) $_3Al_5Ol_2: Ce$ で表され比較的短波長側の黄色系が発光可能な蛍光体と、一般式($Y_{0.4}Gd_{0.6}$) $_3Al_5Ol_2: Ce$ で表され比較的長波長側の黄色系が発光可能な蛍光体とを以下のようにして作製して混合して用いた。これらの蛍光体は、それぞれ必要なY、Gd、Ce の希土類元素を化学量論比で酸に溶解した溶解液を蓚酸で共沈させた。これを焼成して得られる共沈酸化物と、酸化アルミニウムと混合して混合原料をそれぞれ得る。これにフラックスとしてフッ化アンモニウムを混合して坩堝に詰め、空気中1400 の温度範囲で3時間焼成して焼成品を得た。焼成品をそれぞれ水中でボールミルして、洗浄、分離、乾燥、最後に篩を通して形成した。

以上のように作製した比較的短波長側の黄色系蛍光体100重量部と比較的長波長側の黄色系蛍光体100重量部とを、アクリル樹脂1000重量部とよく混合して押し出し成形し、厚さ約180μmの色変換部材として用いる蛍光体膜を形成した。蛍光体膜を導光板の主発光面と同じ大きさに切断し導光板上に配置することにより発光装置を作製した。このようにして作製した実施例11の発光装置の色度点、演色性指数を測定した結果、色度点は、

(x=0.33, y=0.34) であり、演色性指数 (Ra)=88.0 を示した。また、発光効率は101m/wであった。

図22A、図22B及び図22Cにはそれぞれ、実施例11に使用した、式 $(Y_{0.8}Gd_{0.2})_3Al_5O_{12}$: Ceで表される蛍光体、式 $(Y_{0.4}Gd_{0.6})_3Al_5O_{12}$: Ceで表される蛍光体及び発光素子の各発光スペクトルを示す。また、図23には、実施例11の発光ダイオードの発光スペクトルを示す。 さらに耐侯試験として室温60mA通電、室温20mA通電、

請求の範囲

1. 発光層が半導体である発光素子と、該発光素子によって発光された光の一部を吸収して、吸収した光の波長と異なる波長を有する光を発光するフォトルミネセンス蛍光体とを備えた発光装置において、

前記発光素子の発光層が窒化物系化合物半導体からなり、かつ前記フォトルミネセンス蛍光体が、Y、Lu、Sc、La、Gd及びSmからなる群から選ばれた少なくとも1つの元素と、Al、Ga及びInからなる群から選ばれる少なくとも1つの元素とを含んでなるセリウムで付活されたガーネット系蛍光体を含むことを特徴とする発光装置。

- 2. 前記フォトルミネセンス蛍光体が、YとA1を含むイットリウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体を含むことを特徴とする請求項1記載の発光装置。
- 前記フォトルミネセンス蛍光体が、一般式(Re₁₋,Sm_r)₃(Al₁₋,Ga₁)₅O₁₂: Ceで表される蛍光体を含む請求項1記載の発光装置。

ただし、 $0 \le r < 1$ 、 $0 \le s \le 1$ 、Reは、Y、Gdから選択される少なくとも一種である。

4. 前記フォトルミネセンス蛍光体が、一般式 (Y_{1-p-q-r}Gd_pCe_qSm_r)₃ (Al_{1-s}Ga_s)₅O₁₂で表される請求項3記載の発光装置。

ただし、 $0 \le p \le 0$. 8、0. $003 \le q \le 0$. 2、0. $0003 \le r$ ≤ 0 . 08、 $0 \le s \le 1$

5. 前記フォトルミネッセンス蛍光体は、それぞれYとA1とを含んでなる互いに組成の異なる2以上のセリウムで付活されたイットリウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体を含む請求項2記載の発光装置。

- 11. 請求項1記載の発光装置においてさらに、その一側面に前記フォトルミネセンス蛍光体を介して前記発光素子が設けられ、かつその一主表面を除く表面が実質的に反射部材で覆われた略矩形の導光板を備え、前記発光素子が発光した光を前記フォトルミネセンス蛍光体と導光板とを介して面状にして、前記導光板の前記一主表面から出力することを特徴とする発光装置。
- 12. 請求項1記載の発光装置においてさらに、その一側面に前記発光素子が設けられ、その一主表面に前記フォトルミネセンス蛍光体が設けられかつ該一主表面を除く表面が実質的に反射部材で覆われた略矩形の導光板を備え、前記発光素子が発光した光を導光板と前記フォトルミネセンス蛍光体とを介して面状にして、前記導光板の前記一主表面から出力することを特徴とする発光装置。
- 13. 請求項1~10の内の1つに記載の発光装置をマトリックス状に 配置したLED表示器と、該LED表示器を入力される表示データに従っ て駆動する駆動回路とを備えたLED表示装置。
- 14. カップ部とリード部とを有するマウント・リードと、 前記マウント・リードのカップ内に載置されかつ一方の電極がマウント・ リードに電気的に接続されたLEDチップと、

該LEDチップの他方の電極と電気的に接続させたインナー・リードと、 前記LEDチップを覆うように前記カップ内に充填された透光性のコー ティング部材と、

前記マウント・リードのカップ部と、前記インナーリードと該LEDチップの他方の電極との接続部分とを含み、前記コーティング部材で覆われた LEDチップを被覆するモールド部材とを有する発光ダイオードであって、 前記LEDチップの発光層が窒化物系化合物半導体であり、かつ前記コ 以上の蛍光体を含む請求項16記載の発光ダイオード。

ただし、 $0 \le r < 1$ 、 $0 \le s \le 1$ 、Re は、Y、Gdから選択される少なくとも一種である。

20. 前記フォトルミネッセンス蛍光体は、一般式 Y_3 ($Al_{1-1}Ga$.) ${}_5O_{12}$: Ceで表される第1の蛍光体と、一般式 $Re_3Al_5O_{12}$: Ceで表される第2の蛍光体とを含む請求項14記載の発光ダイオード。

ただし、 $0 \le s \le 1$ 、Re は、Y、Ga、Laから選択される少なくとも一種である。

- 21. 前記フォトルミネッセンス蛍光体は、イットリウム・アルミニウムガーネット系蛍光体において、それぞれイットリウムの一部がガドリニウムに置換された第1の蛍光体と第2の蛍光体とを含んでなり、該第1と第2の蛍光体イットリウム・アルミニウムガーネット系蛍光体におけるガドリニウムによる置換量が互いに異なる請求項18記載の発光ダイオード。
- 22. 前記LEDチップの発光スペクトルの主ピークが400nmから530nmの範囲内にあり、かつ前記フォトルミネッセンス蛍光体の主発 光波長が前記LEDチップの主ピークより長い請求項14記載の発光ダイオード。
- 23. 前記発光素子の発光スペクトルの主ピークを400nmから53 0nmの範囲内に設定し、かつ前記フォトルミネッセンス蛍光体の主発光 波長を前記発光素子の主ピークより長く設定することにより白色系の発光 を可能にした請求項1記載の発光装置。

発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl 4 H01L33/00

調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl 4 H01L33/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-1995年

日本国登録実用新案公報 1994-1996年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

JICST

C. 関連すると認められる文献				
引用文献の		関連する		
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号		
Α	JP,08-7614,A(日亜化学工業株式会社)	1-13		
	12、1月、1996(12.01.96)(ファミリーなし)			
A	JP, 07-176794, A (日亜化学工業株式会社)	1-13		
,	14、7月、1995 (14.07.95) (ファミリーなし)			
A	JP, 07-99345, A (日亜化学工業株式会社)	14-23		
	11、4月、1995 (11.04.95) (ファミリーなし)			
A	 JP, 05-152609, A (日亜化学工業株式会社)	14-23		
	18、6月、1993 (18.06.93) (ファミリーなし)			
1				

|x| C欄の続きにも文献が列挙されている。

□ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

国際調査機関の名称及びあて先

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたも
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献 (理由を付す)
- 「O」ロ頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって て出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理 **論の理解のために引用するもの**
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査報告の発送日 28.10.97 国際調査を完了した日 20.10.97

特許庁審査官(権限のある職員) 門田 かづよ

9512 2 K

郵便番号100 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

日本国特許庁(ISA/JP)

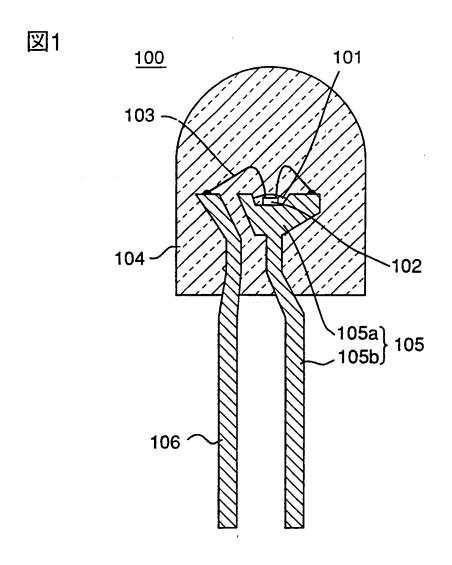
電話番号 03-3581-1101 内線 3255

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP97/02610

A. CL	ASSIFICATION OF SUBJECT MATTER	•			
Int	. Cl ⁶ H01L33/00		•		
According	to International Patent Classification (IPC) or to both	national classification and IPC			
	LDS SEARCHED				
	ocumentation searched (classification system followed by	y classification symbols)			
	. Cl ⁶ H01L33/00				
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1926 - 1996 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971 - 1995 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994 - 1996					
Electronic d	ats base consulted during the international search (name	of data base and, where practicable, search t	erms used)		
JIC	ST				
C. DOCT	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	•			
Category*	Citation of document, with indication, where a	ppropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
A	JP, 08-7614, A (Nichia Chem January 12, 1996 (12. 01. 9	nical K.K.), 96)(Family: none)	1 - 13		
. A	JP, 07-176794, A (Nichia Chemical K.K.), July 14, 1995 (14. 07. 95) (Family: none)				
- А	JP, 07-99345, A (Nichia Che April 11, 1995 (11. 04. 95)		14 - 23		
A JP, 05-152609, A (Nichia Chemical K.K.), June 18, 1993 (18. 06. 93) (Family: none)			14 - 23		
A	A JP, 62-20237, A (Philips' Gloeilampenfabrieken), 1 - 23 January 28, 1987 (28. 01. 87) & EP, 209942, A & US, 4727283, A				
A	<pre>JP, 55-4898, A (Philips' Gloeilampenfabrieken), January 14, 1980 (14. 01. 80) (Family: none)</pre>				
A	JP, 50-43913, A (Matsushita Co., Ltd.),	Electric Industrial	1 - 23		
X Furth	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.			
"A" docum	al categories of cited documents: "T" later document published after the international filing date or prior date and not in conflict with the application but cited to understate of particular relevance "T" later document published after the international filing date or prior date and not in conflict with the application but cited to understate of particular relevance.				
"L" docum	document but published on or after the international filing date one of the claim of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone.				
•	cial reason (as specified) "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document in combined with one or more other such documents, such combined with one or more other such documents, such combined with one or more other such documents, such combined with one or more other such documents.				
	ent published prior to the international filing date but later than ority date claimed	being obvious to a person skilled in th "&" document member of the same patent			
Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report					
October 20, 1997 (20. 10. 97) October 28, 1997 (28. 10. 97)					
Name and	nailing address of the ISA/	Authorized officer			
Japanese Patent Office					
	Facsimile No. Telephone No.				



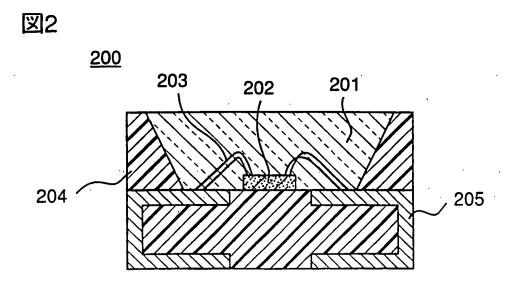


図3A

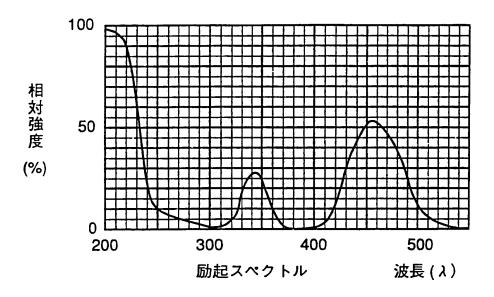
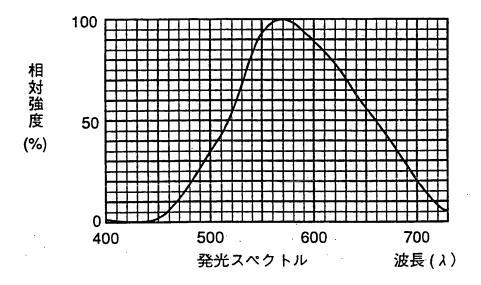


図3B



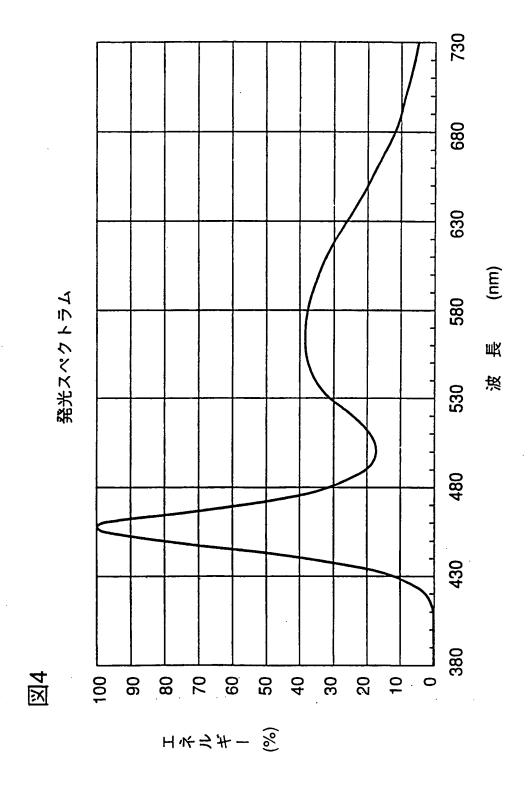


図5A

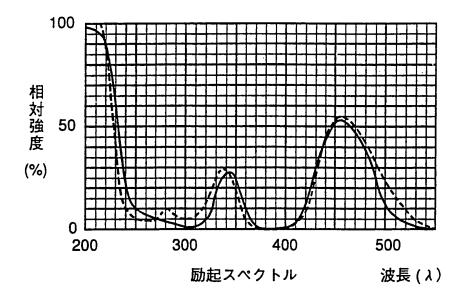


図5B

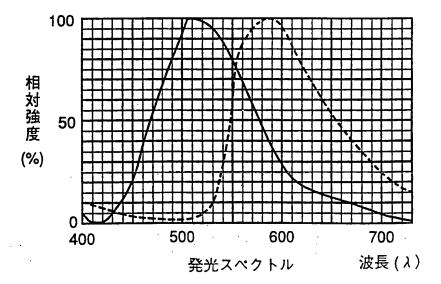
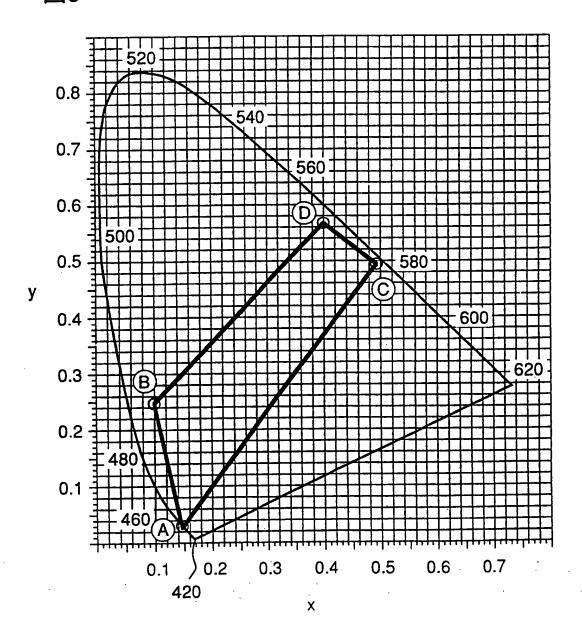
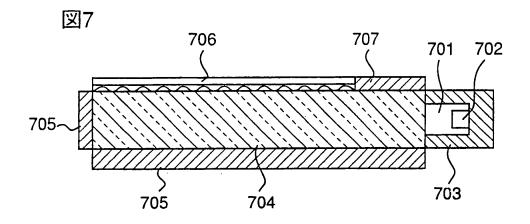
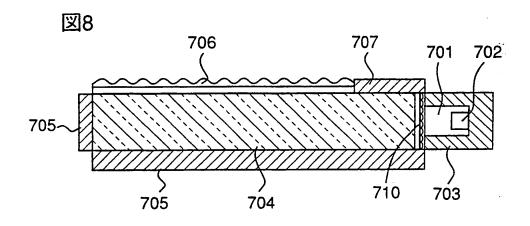
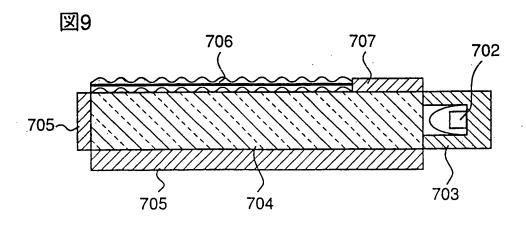


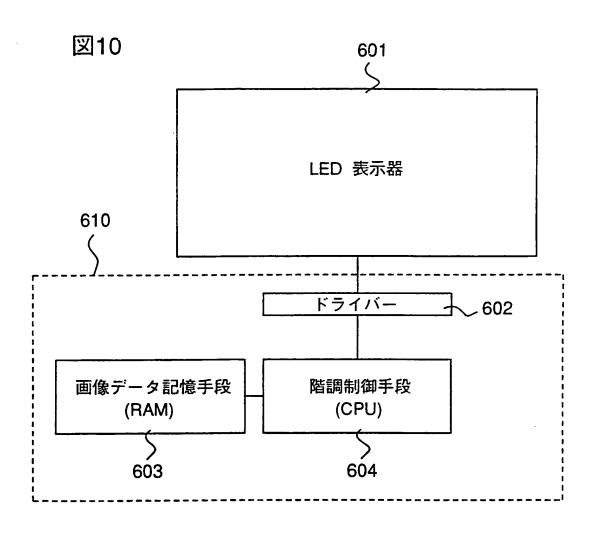
図6

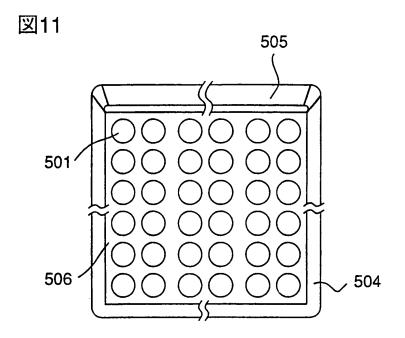


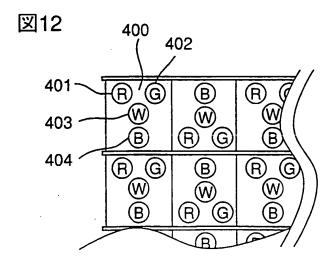


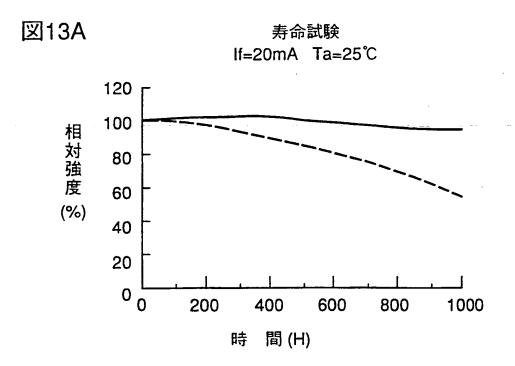












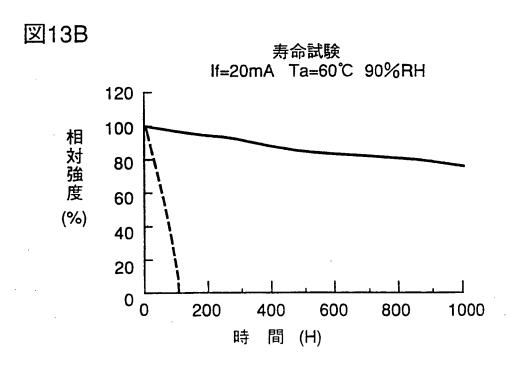


図14A

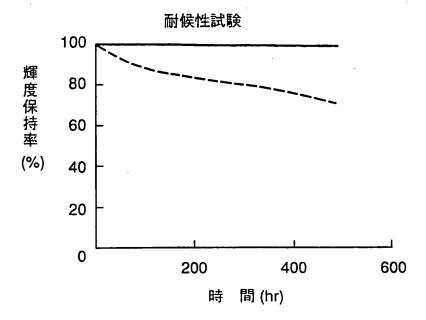
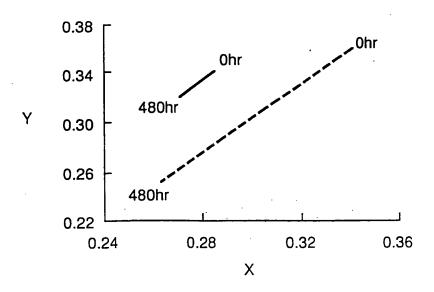
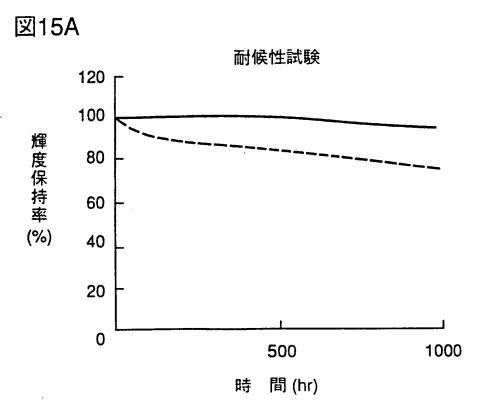
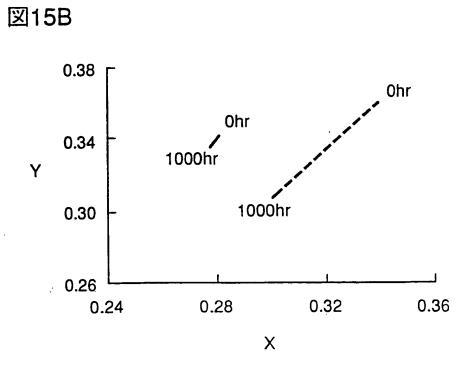


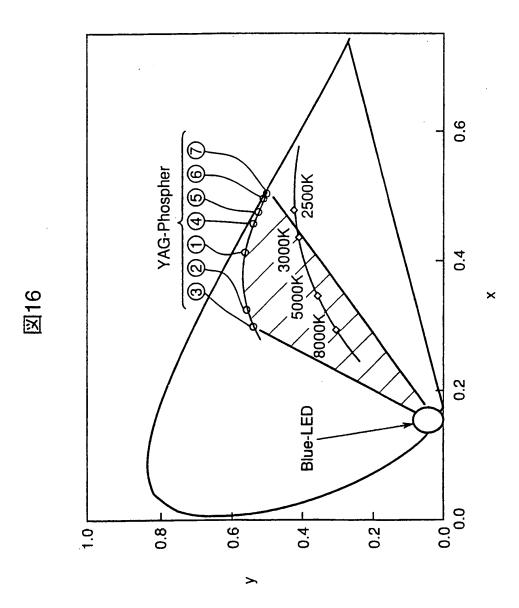
図14B

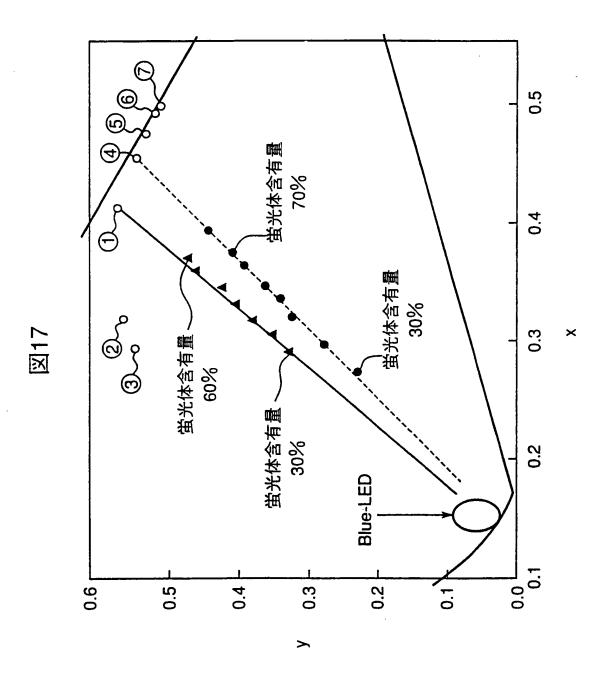


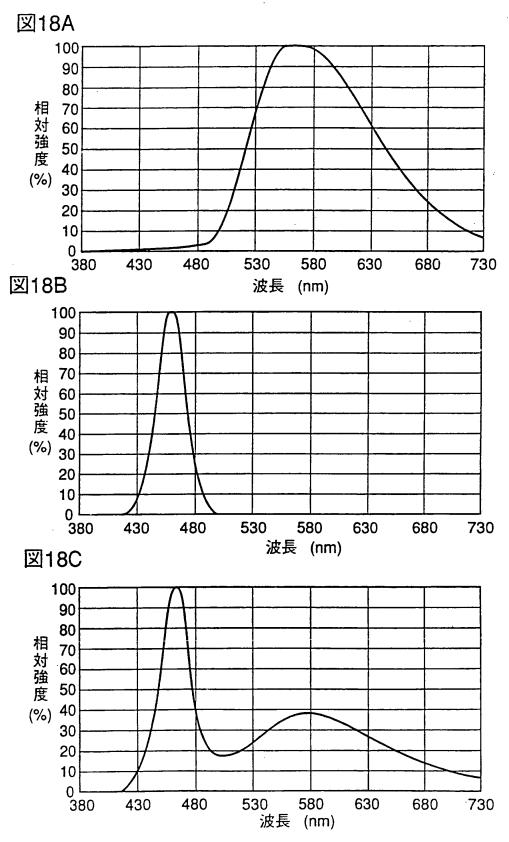




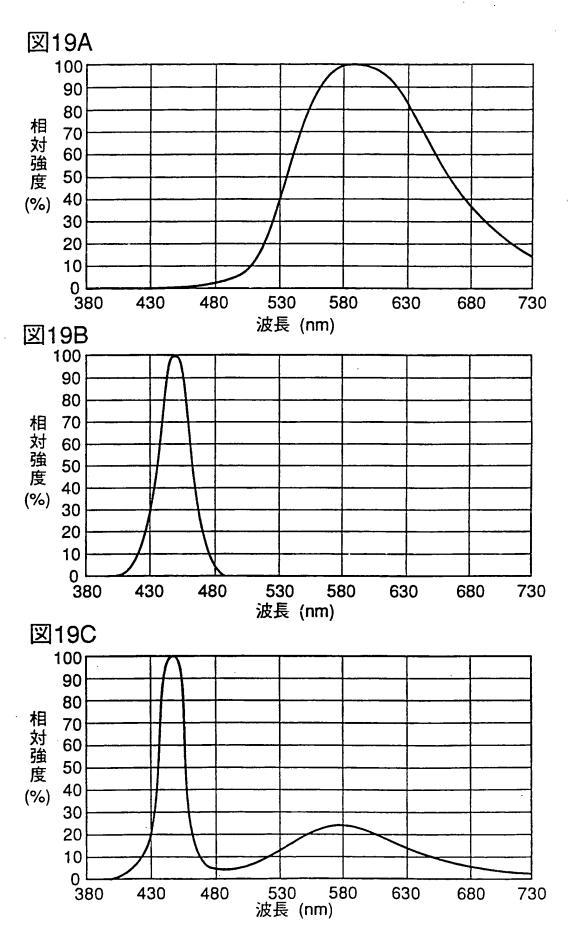
WO 98/05078 PCT/JP97/02610

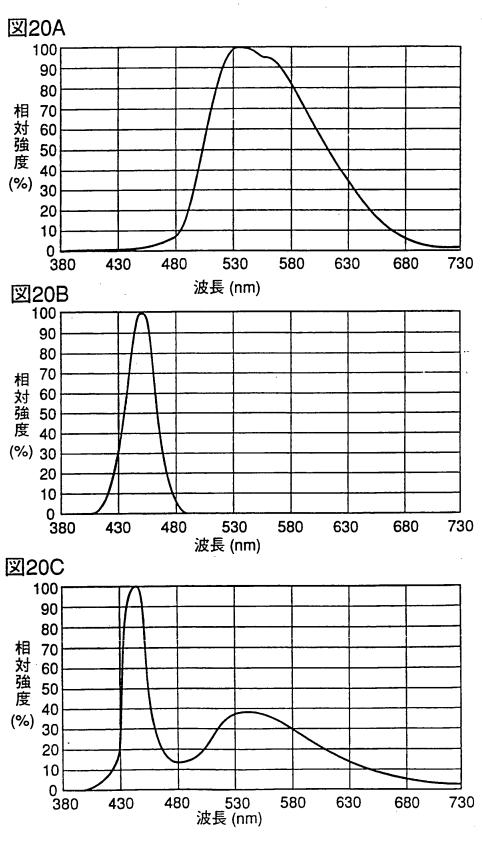


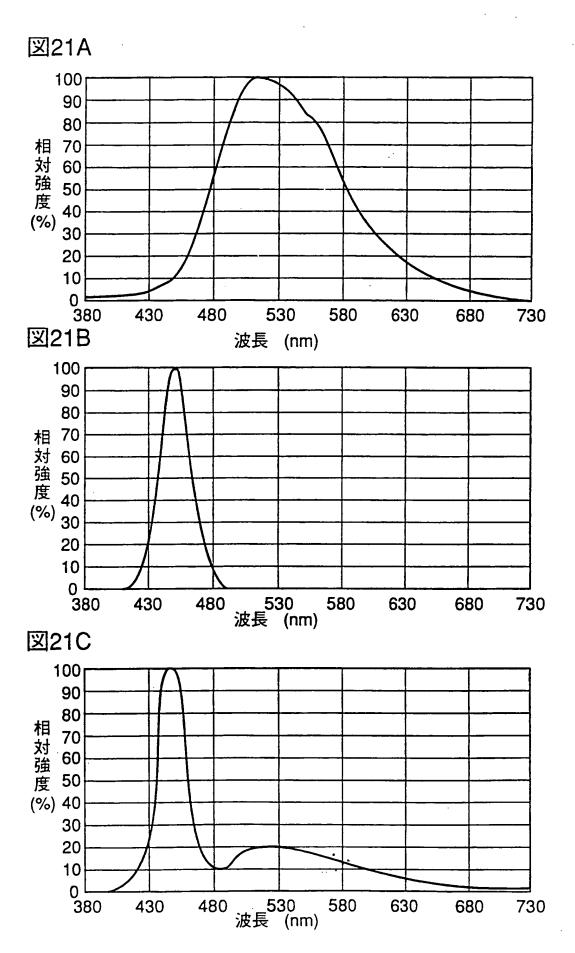


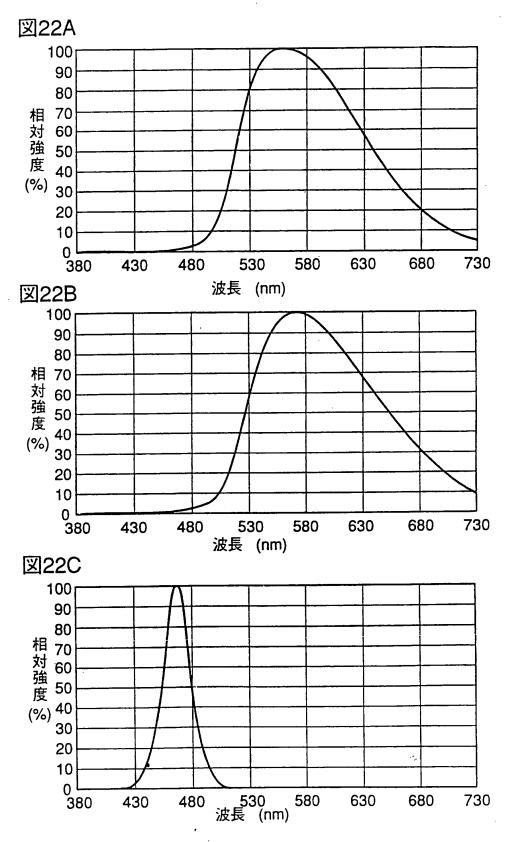


14/19









18/19

